

09/979524

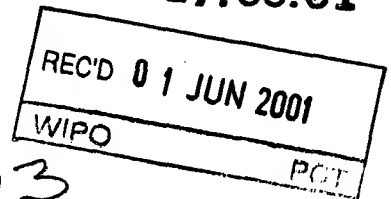
PCT/JP01/02203

17.05.01

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

JP01/2203



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

EKV

#2  
3/20/02  
arr

出 願 年 月 日  
Date of Application:

2000年 3月23日

出 願 番 号  
Application Number:

特願2000-082423

出 願 人  
Applicant(s):

ダイセル化学工業株式会社

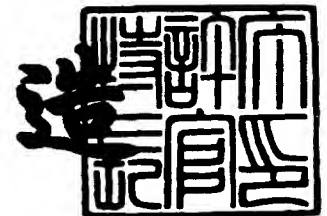
PRIORITY  
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 4月27日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3035466

【書類名】 特許願

【整理番号】 PTK-000428

【提出日】 平成12年 3月23日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 G02B 5/02  
C08J 5/18

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県姫路市余部区上余部 5 0 0 ダイセル上余部アパート 4 3 8 号

【氏名】 高橋 啓司

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県流山市加一丁目 1 2 番地の 1 パークサイドコート 3 0 7

【氏名】 西田 善行

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県姫路市網干区新在家 9 4 0

【氏名】 大村 雅也

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県姫路市網干区余子浜 7 9 - 1 1 - 3 0 6

【氏名】 中塚 修志

【特許出願人】

【識別番号】 000002901

【氏名又は名称】 ダイセル化学工業株式会社

【代表者】 小川 大介

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 013859

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

特 2 0 0 0 - 0 8 2 4 2 3

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 透過型光散乱シート、その製造方法及びそれを用いた液晶表示素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 互いに屈折率の異なる複数のポリマーで構成され、かつ液滴相構造を少なくとも有する透過型光散乱シート。

【請求項 2】 入射光が当方的に拡散し、かつ散乱角  $3 \sim 40^\circ$  に散乱光強度が極大値を有するとともに、全光線透過率が  $70 \sim 100\%$  であることを特徴とする請求項 1 記載の透過型光散乱シート。

【請求項 3】 液滴相構造の液滴の平均直径が  $0.1 \sim 20 \mu\text{m}$  であることを特徴とする請求項 1 及び 2 記載の透過型光散乱シート。

【請求項 4】 液滴相構造の液滴の平均重心間距離が  $0.5 \sim 15 \mu\text{m}$  であり、かつ液滴の平均重心間距離の標準偏差が液滴の平均重心間距離の  $40\%$  以下であることを特徴とする請求項 1 ～ 3 記載の透過型光散乱シート。

【請求項 5】 液滴相構造の液滴の体積が構成体全体の体積の  $30 \sim 70\%$  であることを特徴とする請求項 1 ～ 4 記載の透過型光散乱シート。

【請求項 6】 複数のポリマーの屈折率の差が  $0.01 \sim 0.2$  であることを特徴とする請求項 1 ～ 5 記載の透過型光散乱シート。

【請求項 7】 複数のポリマーの少なくとも一つが酢酸セルロースであることを特徴とする請求項 1 ～ 6 記載の透過型光散乱シート。

【請求項 8】 互いに屈折率の異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液から溶媒を蒸発させてシートを製造する際に、スピノーダル分解により液滴相構造を形成させたことを特徴とする請求項 1 ～ 7 記載の透過型光散乱シート。

【請求項 9】 透明支持体上に請求項 1 ～ 8 記載の透過型光散乱シートを積層したことを特徴とする支持体付き透過型光散乱シート。

【請求項 10】 透明支持体が、トリアセチルセルロースフィルムであることを特徴とする請求項 9 記載の支持体付き透過型光散乱シート。

【請求項 11】 液晶が封入された液晶セルの一方の面に入射光を反射するための反射手段が配設され、他方の面に反射光を偏光するための偏光手段が配設

された反射型液晶表示装置において、偏光手段と液晶セルとの間に請求項1～10記載の透過型光散乱シートが配設されている反射型液晶表示装置。

【請求項12】 互いに屈折率の異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液から溶媒を蒸発させてシートを製造する際に、スピノーダル分解により液滴相構造を形成させることを特徴とするシートの製造方法。

【請求項13】 互いに屈折率の異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液を、ポリビニルアルコールでコートしたトリアセチルセルロースフィルム上に塗布し、該ポリマー溶液の溶媒蒸発過程においてスピノーダル分解により液滴相構造を形成することを特徴とする透過型光散乱シートの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、反射型液晶表示装置において、高輝度の画面を表示するために有用な透過型光散乱シート（フィルム）及びその製造方法並びにそのシートを用いた反射型液晶表示装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

液晶表示装置（LCD）は、パーソナルコンピューター（パソコン）、ワードプロセッサ、液晶テレビ、時計、電卓などの電気製品の表示部に幅広く利用されている。液晶はそれ自体発光しないため、時計、電卓などの低輝度用途を除き、裏面から液晶部を照射するためのバックライトが使用されている。

【0003】

最近、インターネットなどの情報通信のインフラストラクチャーの整備、コンピュータと通信機器の融合による情報のネットワーク化が進んでいる。ネットワーク化により情報のアクセスは時間と場所の制約を受けなくなる。このようなネットワークを効率的に利用するため、現在、PDA（Personal Digital Assistance）などの携帯情報端末が精力的に開発されている。また、ノート型パソコンに代えて、さらに薄型で軽量のモバイル型パソコンの開発がすすめられている。

【0004】

これらの携帯型情報通信機器は可搬性が求められるため、バッテリー駆動時間の長時間化と、通信機器の薄型化・小型化とを両立する必要がある。したがって、これら携帯型情報通信機器に用いるディスプレイには、薄型・軽量であり、かつ低消費電力性であることが求められている。そこで、低消費電力性を達成するため、従来のバックライトを用いる方法に代えて、自然光を利用して表示部を明るくする方法が考えられている。このようなディスプレイとして最も有望視されているのは反射型液晶表示装置である。特に、今後のマルチメディアの進歩に伴う情報の多様化に対応するため、カラーかつ高精細であるとともに、安価な反射型液晶表示装置が求められている。

## 【 0 0 0 5 】

反射型液晶表示装置を構成する反射型液晶表示素子としては、種々の素子が知られており、従来TN型 (Twisted Nematic型) やSTN型 (Super Twisted Nematic型) が広く用いられているが、カラー化と高精細化には、偏光板を利用するタイプ (1枚偏光板タイプ) が有利である。

## 【 0 0 0 6 】

例えば、液晶層をHAN (Hybrid Aligned Nematic) 配向させたR-OCBモードは、低電圧性、広視野角性、高速応答性、中間色調表示性、高コントラスト性などの点で優れた特性を有している。

## 【 0 0 0 7 】

このような反射型液晶表示素子を用いる場合、画面に明るさを付与するため、液晶層に入射する光 (自然光、外部光) を効率的に取り込み、反射板 (光反射性背面電極のように電極が反射板を兼ねる場合や、電極板の指示基板の外側に反射板を設置する場合がある。) で反射し、視認性を妨げない程度に反射光を散乱 (全反射の防止) する必要がある。また、偏光板と光散乱シートとの組み合わせにより、反射効率を向上できる。

## 【 0 0 0 8 】

反射型液晶表示装置に関しては、特開昭63-228887号公報、フォトフアプリケーションシンポジウム (日本印刷学会主催) などにおいて、基本技術や、表面凹凸形状を有する金属薄膜を下部電極として用いることにより全反射を防

止し、表示部の視野角を拡げた液晶表示装置が紹介されている。

【0009】

しかし、表示装置をカラー化する場合、偏光板に加えて、カラーフィルターを用いるため、カラー表示装置では、反射光がロスする割合が大きく、上記拡散反射板方式では、表示画面に十分な明るさを付与できない。特に、カラー表示装置においては、散乱光を一定の方向に指向させる指向型拡散により、高輝度を付与することが重要である。拡散反射板方式で指向性を高めるためには、反射板の凹凸部分の形状及び分布を精密に制御する必要があるが、その分コスト高になってしまう。

【0010】

また、反射光を散乱して高輝度性を付与するため、拡散反射板に代えて、透過型光散乱シートを用いる透過型散乱シートも知られている（特公昭61-8430号公報）。しかし、透過型光散乱シートに指向性を付与するためには、ホログラムを利用してシート樹脂を重合する必要があるなど（1998年日本液晶学会講演会要旨集）、複雑な製造方法を必要とし、やはりコスト高となる。

【0011】

一方、低コストの光散乱シートとして、プラスチックビーズと透明樹脂とで構成され、海島構造を有する粒子散乱型シートなどが知られている（特開平7-261171号公報、特開平7-27904号公報、特開平9-113902号公報）。しかし、これら海島構造のシートでは、透明樹脂マトリックス中にプラスチックビーズがランダムに分散しているため、原理的に散乱光の広がり方がガウス分布に従うため、散乱光に指向性を付与できず、表示の明るさが不十分であった。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】

したがって、本発明の課題は、入射光に拡散性と指向性とを付与できる光散乱シート（又はフィルム）を提供することにある。本発明の他の課題は、入射光に拡散性と指向性を付与できる光散乱シートを用いた反射型LCDを提供することにある。本発明のさらに他の課題は、入射光に拡散性と指向性とを付与できる光

散乱シートを簡便に製造できる方法を提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、前記課題を達成するため鋭意検討した結果、互いに屈折率が異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液から溶媒を蒸発させてシートを製造する際に、適当な条件でスピノーダル分解させると簡便に液滴間の距離に規則性を有する等方性の液滴相構造が形成できること、この様な液滴相構造を有するシートを用いると、入射光に拡散性と指向性を付与できることを見出し、本発明を完成した。

【0014】

すなわち本発明は、互いに屈折率の異なる複数のポリマーで構成され、かつ液滴相構造を少なくとも有する透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、入射光が当方的に拡散し、かつ散乱角 $3 \sim 40^\circ$ に散乱光強度が極大値を有するとともに、全光線透過率が $70 \sim 100\%$ であることを特徴とする前記透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、液滴相構造の液滴の平均直径が $0.1 \sim 20 \mu\text{m}$ であることを特徴とする前記透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、液滴相構造の液滴の平均重心間距離が $0.5 \sim 15 \mu\text{m}$ であり、かつ液滴の平均重心間距離の標準偏差が液滴の平均重心間距離の $40\%$ 以下であることを特徴とする前記透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、液滴相構造の液滴の体積が構成体全体の体積の $30 \sim 70\%$ であることを特徴とする前記透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、互いに屈折率の異なる複数のポリマーの屈折率の差が $0.01 \sim 0.2$ であることを特徴とする前記透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、互いに屈折率の異なる複数のポリマーの少なくとも一つが酢酸セルロースであることを特徴とする前記透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、互いに屈折率の異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液から溶媒を蒸発させてシートを製造する際に、スピノーダル分解により液滴相構造を形成させたことを特徴とする前記透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、透明支持体上に前記透過型光散乱シートを積層



したことを特徴とする支持体付き透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、透明支持体が、トリアセチルセルロースフィルムであることを特徴とする前記支持体付き透過型光散乱シートを提供するものである。また、本発明は、液晶が封入された液晶セルの一方の面に入射光を反射するための反射手段が配設され、他方の面に反射光を偏光するための偏光手段が配設された反射型液晶表示装置において、偏光手段と液晶セルとの間に前記透過型光散乱シート又は前記支持体付き透過型光散乱シートが配設されている反射型液晶表示装置を提供するものである。また、本発明は、互いに屈折率の異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液から溶媒を蒸発させてシートを製造する際に、スピノーダル分解により液滴相構造を形成させることを特徴とするシートの製造方法を提供するものである。また、本発明は、互いに屈折率の異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液を、ポリビニルアルコールでコートしたトリアセチルセルロースフィルム上に塗布し、該ポリマー溶液の溶媒蒸発過程においてスピノーダル分解により液滴相構造を形成することを特徴とする透過型光散乱シートの製造方法を提供するものである。

## 【 0 0 1 5 】

## 【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳細に説明する。なお、本明細書において「シート」とは、厚さの如何を問わず二次元的構造物を意味し、フィルムを含む意味に用いる。

## 【 0 0 1 6 】

## 〔透過型光散乱シート〕

本発明の透過型光散乱シートは、互いに屈折率の異なる複数のポリマーで構成され通常の使用雰囲気（特に、約 10 ～ 30℃ 程度の室温下）において、相分離構造である液滴相構造を少なくとも有していることを特徴とする。さらに好ましくは、入射光が等方的に拡散し、かつ散乱角  $3^{\circ} \sim 40^{\circ}$  に散乱光強度が極大値を有するとともに、透過率が 70 ～ 100% の光散乱シートである。そして、光散乱性を高めるため、複数のポリマーは、屈折率の差が、0.01 ～ 0.2、好ましくは 0.1 ～ 0.15 となるように組み合わせるのが望ましい。ポリマーの

屈折率の差が0.01未満では、十分な強度の散乱光を生じさせるシートを得ることができず、屈折率の差が0.2より大きいと、散乱光に指向性を付与できない。

#### 【0017】

複数のポリマーは、例えば、スチレン系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ビニルエステル系樹脂、ビニルエーテル系樹脂、ハロゲン含有樹脂、オレフィン系樹脂、脂環式オレフィン樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、熱可塑性ポリウレタン樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリフェニルエーテル系樹脂、セルロース誘導体(セルロースエステル類、セルロースカーバメート類、セルロースエーテル類など)、シリコーン樹脂(ポリジメチルシロキサン、ポリメチルフェニルシロキサンなど)、脂環式ポリオレフィン樹脂、ゴム又はエラストマー(ポリブタジエン、ポリイソプレンなどのジエン系ゴム、スチレン-ブタジエン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体、アクリルゴム、ウレタンゴム、シリコーンゴムなど)などから選択することができる。

#### 【0018】

スチレン系樹脂には、スチレン系単量体の単独又は共重合体(ポリスチレン、スチレン- $\alpha$ -メチルスチレン共重合体、スチレン-ビニルトルエン共重合体など)、スチレン系単量体と他の重合性単量体((メタ)アクリル系単量体、無水マレイン酸、マレイミド系単量体、ジエン類など)との共重合体などが含まれる。スチレン系単量体と他の重合性単量体との共重合体としては、スチレン-アクリロニトリル共重合体(AS樹脂)、スチレンと(メタ)アクリル系単量体との共重合体[スチレン-メタクリル酸メチル共重合体、スチレン-メタクリル酸メチル-(メタ)アクリル酸エステル共重合体、スチレン-メタクリル酸メチル-(メタ)アクリル酸共重合体など]、スチレン-無水マレイン酸共重合体などが挙げられる。これらの中で、好ましいスチレン系樹脂としては、ポリスチレン、スチレンと(メタ)アクリル系単量体との共重合体[スチレン-メタクリル酸メチル共重合体などのスチレンとメタクリル酸メチルを主成分とする共重合体]、AS樹脂、スチレン-ブタジエン共重合体などが挙げられる。

【0019】

(メタ)アクリル系樹脂としては、(メタ)アクリル系単量体の単独又は共重合体、(メタ)アクリル系単量体と他の共重合性単量体との共重合体が使用できる。(メタ)アクリル系単量体には、例えば、(メタ)アクリル酸メチル、(メタ)アクリル酸エチル、(メタ)アクリル酸ブチル、(メタ)アクリル酸セブチル、(メタ)アクリル酸イソブチル、(メタ)アクリル酸ヘキシル、(メタ)アクリル酸オクチル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシルなどの(メタ)アクリル酸C1-10アルキル；(メタ)アクリル酸フェニルなどの(メタ)アクリル酸アリール；ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレートなどのヒドロキシアルキル(メタ)アクリレート；グリシジル(メタ)アクリレート；N，N-ジアルキルアミノアルキル(メタ)アクリレート；(メタ)アクリロニトリル、トリシクロデカンなどの脂環基を有する(メタ)アクリレートなどが例示できる。他の共重合性単量体には、前記スチレン系単量体、ビニルエステル系単量体、無水マレイン酸、マレイン酸、フマル酸などが例示できる。これらの単量体は単独又は二種以上組み合わせて使用できる。

【0020】

(メタ)アクリル系樹脂としては、例えば、ポリメタクリル酸メチルなどのポリ(メタ)アクリル酸エステル、メタクリル酸メチルー(メタ)アクリル酸共重合体、メタクリル酸メチルーアクリル酸エステル(メタ)アクリル酸共重合体、メタクリル酸メチルー(メタ)アクリル酸エステル共重合体、(メタ)アクリル酸エステル-スチレン共重合体(MS樹脂など)などが挙げられる。好ましい(メタ)アクリル系樹脂としては、ポリ(メタ)アクリル酸メチルなどのポリ(メタ)アクリル酸C1-5アルキル、特にメタクリル酸メチルを主成分(50～100重量%、好ましくは70～100重量%程度)とするメタクリル酸メチル系樹脂が挙げられる。

【0021】

ビニルエステル系樹脂としては、ビニルエステル系単量体の単独又は共重合体(ポリ酢酸ビニル、ポリプロピオン酸ビニルなど)、ビニルエステル系単量体と他の共重合性単量体との共重合体(酢酸ビニルー塩化ビニル共重合体、酢酸ビニ

ルー（メタ）アクリル酸エステル共重合体など）又はそれらの誘導体が挙げられる。ビニルエステル系樹脂の誘体には、ポリビニルアルコール、エチレンービニルアルコール共重合体、ポリビニルアセタール樹脂などが含まれる。

【0022】

ビニルエーテル系樹脂としては、ビニルメチルエーテル、ビニルエチルエーテル、ビニルプロピルエーテル、ビニルｔ-ブチルエーテルなどのビニルC1-10アルキルエーテルの単独又は共重合体、ビニルC1-10アルキルエーテルと他の共重合性単量体との共重合体（ビニルアルキルエーテルー無水マレイン酸共重合体など）が挙げられる。

【0023】

ハロゲン含有樹脂としては、ポリ塩化ビニル、ポリフッ化ビニリデン、塩化ビニルー酢酸ビニル共重合体、塩化ビニルー（メタ）アクリル酸エステル共重合体、塩化ビニリデンー（メタ）アクリル酸エステル共重合体などが挙げられる。

【0024】

オレフィン系樹脂には、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレンなどのオレフィンの単独重合体、エチレンー酢酸ビニル共重合体、エチレンービニルアルコール共重合体、エチレンー（メタ）アクリル酸共重合体、エチレンー（メタ）アクリル酸エステル共重合体などの共重合体が挙げられる。

【0025】

脂環式オレフィン系樹脂としては、立体的に剛直なトリシクロデカンなどの脂環基を有した樹脂が挙げられる。

【0026】

ポリカーボネート系樹脂には、ビスフェノール類（ビスフェノールAなど）をベースとする芳香族ポリカーボネート、ジエチレングリコールビスアリルカーボネートなどの脂肪族ポリカーボネートなどが含まれる。

【0027】

ポリエステル系樹脂には、テレフタル酸などの芳香族ジカルボン酸を用いた芳香族ポリエステル（ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどのポリC2-4アルキレンテレフタレートやポリC2-4アルキレンナフタレー

トなどのホモポリエステル、C2-4 アルキレンテレフタレート及び／又はC2-4 アルキレンナフタレート単位を50重量%以上含むコポリエステルなど）、アジピン酸などの脂肪族ジカルボン酸を用いた脂肪族ポリエステルなどが含まれる。ポリエステル系樹脂には、ε-カプロラクトンなどのラクトンの単独又は共重合体も含まれる。

【0028】

ポリアミド系樹脂としては、ナイロン46、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン610、ナイロン612、ナイロン11、ナイロン12などの脂肪族ポリアミド、ジカルボン酸（例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、アジピン酸など）とジアミン（例えば、ヘキサメチレンジアミン、メタキシリレンジアミンなど）とから得られるポリアミドなどが挙げられる。ポリアミド系樹脂は、ε-カプロラクタムなどのラクタムの単独又は共重合体であってもよく、ホモポリアミドに限らずコポリアミドであってもよい。

【0029】

セルロース誘導体のうちセルロースエステル類としては、例えば、脂肪族有機酸エステル（セルロースジアセテート、セルローストリアセテートなどのセルロースアセテート；セルロースプロピオネート、セルロースブチレート、セルロースアセテートプロピオネート、セルロースアセテートブチレートなどのC1-6 有機酸エステルなど）、芳香族有機酸エステル（セルロースフタレート、セルロースベンゾエートなどのC7-12芳香族カルボン酸エステル）、無機酸エステル類（例えば、リン酸セルロース、硫酸セルロースなど）が例示でき、酢酸・硝酸セルロースエステルなどの混合酸エステルであってもよい。セルロース誘導体には、セルロースカーバメート類（例えば、セルロースフェニルカーバメートなど）、セルロースエーテル類（例えば、シアノエチルセルロース；ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロースなどのヒドロキシ-C2-4 アルキルセルロース；メチルセルロース、エチルセルロースなどのC1-6 アルキルセルロース；カルボキシメチルセルロース又はその塩、ベンジルセルロース、アセチルアルキルセルロースなど）も含まれる。

【0030】

これらの内好ましいポリマーとしては、成形性又は製膜性、透明性、耐候性を有する樹脂が挙げられ、具体的には、酢酸セルロースなどのセルロース誘導体、(メタ)アクリル系樹脂等を挙げる事が出来る。使用するポリマーのガラス転移温度は、例えば、 $-100 \sim 250^{\circ}\text{C}$ 程度、好ましくは $-50 \sim 230^{\circ}\text{C}$ 程度、さらに好ましくは $0 \sim 200^{\circ}\text{C}$ 程度(例えば、 $50 \sim 180^{\circ}\text{C}$ 程度)の範囲から選択できる。なお、製造したシートの強度や耐候性の点から、構成ポリマーのうち少なくとも1つのポリマーのガラス転移温度は、 $50^{\circ}\text{C}$ 以上(例えば、 $70 \sim 200^{\circ}\text{C}$ 程度)、好ましくは $100^{\circ}\text{C}$ 以上(例えば、 $100 \sim 170^{\circ}\text{C}$ 程度)であるのが有利である。また、シートの成形性の点から、構成ポリマーのガラス転移温度は $250^{\circ}\text{C}$ 以下(例えば、 $70 \sim 200^{\circ}\text{C}$ )が好ましく、更に、より好ましくは $200^{\circ}\text{C}$ 以下(例えば、 $80 \sim 180^{\circ}\text{C}$ )である。

## 【0031】

複数のポリマーの組み合わせは、ポリマーが互いに相溶性を示す組み合わせであってもよく、非相溶性(相分離性)を示す組み合わせであってもよい。以下、複数のポリマーの組み合わせについて、2種のポリマー(第1のポリマー及び第2のポリマーと称する)を使用する場合を例に取り説明する。

## 【0032】

第1のポリマーと第2のポリマーとの組み合わせは特に制限されない。組み合わせの一例を挙げれば、第1のポリマーがセルロース誘導体(酢酸セルロースなど)である場合、第2のポリマーは、ポリカーボネート系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ビニルエステル系樹脂、脂環式オレフィン樹脂などが好ましい。

## 【0033】

第1のポリマーと第2のポリマーとの配合割合は、例えば、前者/後者 $=10/90 \sim 90/10$ (重量比)、好ましくは $30/70 \sim 70/30$ (重量比)、更に好ましくは $40/60 \sim 60/40$ (重量比)である。ポリマーの配合割合が一方に偏りすぎると、相分離した二相間の体積比が一方に偏るため散乱光が弱くなる。

## 【0034】

なお、3種以上のポリマーでシートを形成する場合、各ポリマーの含有量は、

通常、1～90重量%（例えば、1～70重量%、好ましくは5～70重量%、さらに好ましくは10～70重量%）程度の範囲から選択できる。

【0035】

本発明の透過型光散乱シートは、少なくとも液滴相構造を有している。液滴相構造とは、球状、楕円回転体状などの独立相を持つ海島構造のことである。本発明のシートでは、少なくとも液滴相構造を有していればよく、液滴相構造のみでも、例えば、液滴相構造と共連続相構造とが混在した構造を有していてもよい。スピノーダル分解において、相分離の進行に伴って共連続相構造が形成し、さらに相分離を進行させると、連続相が自らの表面張力により非連続化し、液滴相構造に変化する。この際に、相分離の進行を液滴同士が会合しない程度に制御すれば、散乱光に指向性が付与できる。

【0036】

本発明でいう液滴相構造は、通常、シート面内において異方性が低減されており、実質的に等方性を持つ。なお、等方性とは、シート面内のどの方向に対しても液滴の平均重心間距離が等しいことを意味する。

【0037】

本発明の液滴構造は、液滴の重心間距離の標準偏差が液滴の平均重心間距離の40%以下に制御されており、液滴の重心間距離に規則性を有する。そのため、シートに入射した光はブラッグ反射により特定方向に散乱光が指向する。従って、反射型液晶表示装置に装着しても、散乱光を一定の方向に指向させることができ（指向型拡散）、表示画面を高度に明るくすることができるので、従来の粒子分散型の透過型光散乱シートでは解決できなかったパネルへの光源の映りの問題を回避できる。

【0038】

本発明の透過型光散乱シートにおいて液滴の平均重心間距離は、0.5～15  $\mu\text{m}$  が好ましい。液滴の平均重心間距離が0.5  $\mu\text{m}$  以下の場合、散乱光が広角度になり、十分な散乱光強度が得られない。一方、平均重心間距離が15  $\mu\text{m}$  以上となると、散乱光の指向方向が直進光の方向とほぼ一致するため、光の拡散性が低下する。

## 【0039】

さらに、液滴の重心間距離の標準偏差は液滴の平均重心間距離の40%以下に制御されていることが好ましい。液滴の重心間距離の標準偏差が液滴の平均重心間距離の40%以上となると、液滴の重心間距離の分布が大きくなり、散乱光の特定方向への指向性が低下する。

## 【0040】

液滴の重心位置は液滴を均一な物体と見なし計算することができる。本発明でいう液滴の重心間距離とは、隣接する液滴のお互いの重心位置の間の距離である。なお、液滴の平均重心間距離およびその標準偏差は、透過型光散乱シートの顕微鏡写真（透過型顕微鏡、位相差顕微鏡、共焦点レーザー顕微鏡など）の画像処理（例えば、東洋紡績株式会社製 Image Analyzer V10）により測定し、算出することができる。

## 【0041】

また、後述の散乱光の指向性の評価法と同様の方法により、散乱光強度が極大になる散乱角度 $\theta$ を測定し、下記のブラッグ反射条件の式より液滴の平均重心間距離 $d$ を算出してもよい。

## 【0042】

$$2d \cdot \sin(\theta/2) = \lambda$$

（式中、 $d$ は液滴の平均重心間距離を、 $\theta$ は散乱角度を、 $\lambda$ は光の波長を示す）

透過型光散乱シートの厚さは、例えば、0.5～300 $\mu\text{m}$ 程度、好ましくは1～100 $\mu\text{m}$ 程度、さらに好ましくは1～30 $\mu\text{m}$ 程度である。シートの厚みが薄すぎると、散乱光の強度が低下する。また、シートの厚みが厚すぎると、拡散性が強くなりすぎ、指向性が低下する。また、反射型液晶表示装置に適用した場合に、装置の厚みや重量が増加するとともに、表示ボケが生じ、表示画面の精細性が低下する。なお、ポリマーの屈折率の差が小さい場合、シートの厚みは厚い方が好ましく、反対に屈折率の差が大きい場合、シートの厚みは薄い方が好ましい。

## 【0043】

本発明の透過型光散乱シートは、散乱光を高度に指向化できる。散乱光の指向



性は、例えば、図2に示すような、偏光板：1、酢酸ビニル系粘着剤：9、光散乱シート：2、カラーフィルター：8、ガラス板（厚さ1mm）：3、及びアルミニウム反射板：5を積層した反射型LCDモデル装置を用いて測定できる。この反射型LCDモデル装置に対して、正面方向から垂直にレーザー光（NIHON KAGAKU ENG NEO-20MS：10）を照射し、散乱角度 $\theta_1$ に対応する反射光の強度（散乱光強度）を測定する。従来の透過型シートを用いた場合、散乱光は、 $\theta_1 = 0^\circ$ を中心とするガウス分布を示すのに対し、本発明の透過型光散乱シートを用いると、散乱光は、指向方向（ $\theta_1 = 3 \sim 40^\circ$ 、好ましくは $5 \sim 30^\circ$ 、さらに好ましくは $10 \sim 20^\circ$ ）に強い極大分布を示す。

#### 【0044】

本発明の透過型光散乱シートの全光線透過率（透明度）は、例えば、70～100%程度、好ましくは80～100%程度、さらに好ましくは90～100%程度である。なお、全光線透過率は、日本電色工業（株）製のヘイズメーター（NDH-300A）により測定できる。

#### 【0045】

##### 〔透過型光散乱シートの製造方法〕

本発明の透過型光散乱シートは、互いに屈折率が異なる複数のポリマーで構成され、かつ液滴相構造を少なくとも有する透過型光散乱シートであり、好ましい製造方法は、互いに屈折率が異なる複数のポリマーで構成された樹脂組成物をシート成形し、スピノーダル分解により誘起された相分離構造を固定化し、等方性の液滴相構造を形成する方法である。

#### 【0046】

具体的に説明すると、シート成形法は、例えば、樹脂組成物の溶液（又はスラリー）を流延又はコーティングするキャスト法やコーティング法、ポリマー組成物をガラス転移温度以上の温度で熔融混練してTダイなどからシート状に押出成形する方法（Tダイ法、インフレーション法など）が使用できる。

#### 【0047】

ここで、シート成形しながら同時にスピノーダル分解させて等方性の液滴相構造を形成させても良いし、複数のポリマーが均一に相溶したシートを成形し、そ

の後適当な処理によってスピノーダル分解させて等方性の液滴相構造を形成させても良い。

【0048】

シート成形しながら同時にスピノーダル分解させる方法としては、複数のポリマーを共通溶媒に溶解させて均一溶液をつくり、溶媒を蒸発させることによりスピノーダル分解させる方法が挙げられる。すなわち、複数のポリマーを共通溶媒に溶解させた均一溶液を流延又はコーティングする際に、溶媒の沸点より低い温度（例えば、溶媒の沸点より1～120℃、好ましくは、5～50℃程度低い温度）で溶媒を蒸発させ、スピノーダル分解によって等方性の液滴相構造を形成させる方法である。

【0049】

均一溶液の溶媒の蒸発によるスピノーダル分解により誘起された相分離構造を固定化することによる、等方性の液滴相構造の形成方法は、原理上樹脂組成物間の相溶性に影響されない。従って、樹脂組成物とその構成ポリマーの分解温度以下の温度において混練によって相溶性を示さない場合に特に有効である。樹脂組成物の共通溶媒は、個々のポリマーの溶解性を考慮して選択することが出来る。

【0050】

樹脂組成物を共通溶媒に溶解させて調製した均一溶液中の溶質の濃度は、相分離が生じる濃度と流延性又はコーティング性を考慮して決められる。濃度が高すぎると、相分離を起こしやすくなり、逆に濃度が低すぎると、流延性又はコーティング性に支障をきたす。濃度は具体的には、例えば、1～40wt%、好ましくは2～20wt%、さらに好ましくは、5～15wt%である。

【0051】

樹脂組成物が高温相溶型であり、構成ポリマーの分解温度以下の溶融温度で構成ポリマーが相溶する場合には、Tダイなどからシート状に押出成形する際に、上限臨界共溶温度（UCST）以下の温度（例えば、UCSTより10～50℃、好ましくは20～40℃程度低い温度）に保持する方法も用いられる。

【0052】

複数のポリマーが均一に相溶化したシートを成形し、その後適当な処理によっ

てスピノーダル分解させる方法としては、樹脂組成物を慣用の成形方法により均一相状態のシートに成形し、そのシートを構成ポリマーの中で最もガラス転移温度が高いポリマーのガラス転移温度以上で熱処理して相分離させればよい。尚、樹脂組成物が下限臨界共溶温度（LCST）型の相分離性を示す場合、シートを上条件に加えて、LCST以上の温度（例えば、LCSTより10～100℃、好ましくは20～80℃程度高い温度）にする必要がある。又、樹脂組成物が上限臨界共溶温度（UCST）型の相分離性を示す場合、相分離はガラス転移温度以上、UCST以下の温度範囲で起こるので、その温度範囲で熱処理、超音波処理などを行えばよい。熱処理後、構成ポリマーのガラス転移温度以下（例えば、主たるポリマーのガラス転移温度以下）に冷却することにより、形成した相構造を固定化できる。なお、LCST型樹脂組成物のシートを冷却する場合、シートを急冷（例えば、冷水を使用する）するのが好ましい。

【0053】

以上説明したスピノーダル分解を利用する等方性の液滴相構造の形成方法は、溶媒蒸発、熱処理、冷却などの簡便な手段を利用しているため、低コストで液滴相構造を有するシートを製造できる。

【0054】

なお、透過型光散乱シートには、種々の添加剤、例えば、安定化剤（酸化防止剤、紫外線吸収剤、熱安定剤など）、可塑剤、着色剤（染料や顔料）、難燃剤、帯電防止剤、界面活性剤などを添加してもよい。また、透過型光散乱シートの表面には、必要により、種々のコーティング層、例えば、帯電防止層、防曇層、離型層などを形成してもよい。

【0055】

また、本発明の透過型光散乱シートは、単独で用いてもよいが、支持シート又はフィルム（透明支持体）に積層してもよい。支持シートとの積層により、シート強度を高くすることができる。

【0056】

上記透明支持体としては、光学的等方性フィルム（又はシート）を用いることができる。例えば、ポリエーテルサルフォン、ポリアリレート、ポリカーボネー

ト、ポリスルホン、ポリエステル、ポリエーテルケトン等の透明高分子や、ア-  
ートン、ゼオネックス等の脂環式オレフィン高分子、ポリエチレン、ポリプロピ  
レン等のポリオレフィン系高分子、塩化ビニリデン、ポリビニルアルコール、ポ  
リスチレン、アクリル樹脂等のビニル系高分子、トリアセチルセルロース、ジア  
セチルセルロース等のセルロース系高分子を挙げることが出来る。これらの透明  
支持体の内、好ましいものとしては、低複屈折率であり、LCD用偏光板保護フ  
ィルムとして実績があることからトリアセチルセルロースフィルムが挙げられる  
。

## 【0057】

本発明の透過型光散乱シートに支持シート又は透明支持体を積層する方法して  
は、透過型光散乱シートを製造してから、張り合わせる方法や、透明支持体上に  
透過型光散乱シートを製造する方法が挙げられる。

## 【0058】

透明支持体上に透過型光散乱シートを製造する方法の一例として、トリアセチ  
ルセルロースフィルム上に透過型光散乱シートを製造する方法を述べる。

## 【0059】

樹脂組成物を共通溶媒に溶解させて調製した均一溶液をトリアセチルセルロ-  
スフィルム上にコーティングして、溶媒を蒸発させて液滴相構造を形成させる場  
合、使用する溶媒の種類によってはトリアセチルセルロースフィルムが溶解また  
は膨潤することがある。その場合には、トリアセチルセルロースフィルムにあら  
かじめ適当なコーティング処理を施すと良い。コーティング処理としては、例え  
ば、耐溶剤性の優れた等方性高分子樹脂を塗布し乾燥させ方法やハードコート剤  
を塗布し、熱もしくは紫外線で硬化させる方法、蒸着、スパッタ等の真空製膜や  
無機材料を塗布したのち高温で焼成する溶解無機コート膜の製膜方法等がある。  
コーティング処理に用いることの出来る耐溶剤性が優れた等方性高分子樹脂とし  
ては、ポリアクリロニトリル系樹脂、エポキシ系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポ  
リプロピレン樹脂、ポリシロキサン系樹脂、架橋シリコン系樹脂、メラミン系  
樹脂、ビニルアルコール系樹脂やこれらの共重合体等が挙げられる。これらの中  
で好ましいものとしては、コーターで容易にコート出来ることから、ポリビニル

アルコールや、エチレンビニルアルコール共重合体等が挙げられる。

【0060】

尚、ハードコート剤としては、エポキシ系、アクリル系、シリコン系等の高分子樹脂や金属酸化物、ガラス、セラミックス等の無機物が挙げられる。

【0061】

〔反射型LCD〕

本発明の透過型光散乱シートは、反射手段と偏光手段とを備えた反射型LCDに適用できる。例えば、異なる偏光性を有する2枚の偏光板を用いた偏光板2枚方式の反射型LCDや、1つの偏光板を用いた偏光板1枚方式の反射型LCDなどに適用できる。偏光板1枚方式の反射型LCDは、例えば、1枚の偏光板と、種々のモード（ツイストネマチック液晶を用いたモード、R-OCB (Optically Compensated Bend) モード、平行配向モードなど）とを組み合わせた反射型LCDである。

【0062】

図1は、反射型LCDの概略断面図である。一对の透明基板3（ガラス板など）の間に封入された液晶4（液晶層など）を備えた液晶セル6の片側の透明基板には、入射光を反射するための反射手段5（例えば、鏡面反射板などの反射層）が積層されている。また、液晶セル6の他方の透明基板には、カラー表示のためのカラー化手段8（カラーフィルターなど）を介して、本発明の透過型光散乱シート2が積層されている。また、透過型光散乱シート2の他方の面には、反射光を偏光するための偏光手段1（偏光板などの偏光層）が積層されている。なお、反射型LCDをモノクロ表示に使用する場合、前記カラー化手段8は必ずしも必要ではない。

【0063】

このような反射型LCDにおいて、観察者側のフロント面7から入射した光（入射光）は、透過型光散乱シート2により拡散されたのち、反射手段5で反射され、再度透過型光散乱シート2により拡散される。本発明の透過型光散乱シートを用いて反射型LCDを構成すると、拡散性を付与しながら、反射光を一定の方向に指向させることができるため、画面表示を明るくすることができる。さらに

、カラー表示であっても十分な明るさを確保できるので、カラー反射型液晶表示装置において鮮明なカラー画像を表示できる。

【 0 0 6 4 】

【実施例】

以下に、実施例に基づいて、本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【 0 0 6 5 】

（実施例 1）

酢酸セルロース（酢化度 5 5 . 0 %、重合度 3 0 0；ダイセル化学工業（株）製 HDP）3 重量部とポリメタクリル酸メチル（PMMA；三菱レイヨン製 BR 8 0）3 重量部をアセトン溶媒 9 4 重量部に溶解した。この溶液をワイヤーバー # 4 0 を用いてガラス板上に流延した後、3 0℃のオープン内で 3 分間放置し、アセトンを蒸発させてガラス板上に厚さ 5  $\mu$ m のシート層を形成させた。このシートをガラス板から剥離し、透過型光学顕微鏡により観察したところ、シートは規則正しい液滴相構造を有していた。

【 0 0 6 6 】

この透過型光学顕微鏡写真を東洋紡績株式会社製 Image Analyzer V 1 0 を用いて画像解析して、液滴の平均直径、液滴の平均重心間距離を求めたところ、液滴の平均重心間距離は 3 . 9  $\mu$ m で、その標準偏差は平均値の 2 0 % であり、液滴の平均直径は 2 . 8  $\mu$ m であった。また、液滴部分のシートに占める割合は、5 0 % であった。更に、J I S K 7 1 0 5 に準拠して、ヘーズメーター（日本電色工業（株）製、NDH-3 0 0 A）を用いてシートの全光線透過率を測定したところ、9 0 % であった。

【 0 0 6 7 】

（実施例 2）

酢酸セルロース（酢化度 5 5 . 0 %、重合度 3 0 0；ダイセル化学工業（株）製 HDP）3 重量部とポリメタクリル酸メチル（PMMA；三菱レイヨン製 BR 8 0）3 重量部をアセトン溶媒 9 4 重量部に溶解した。透明支持体として、トリアセチルセルロースフィルム（厚み 5 0  $\mu$ m）の表面をポリビニルアルコール（

クラレ製アルキル変性PVA MP203、けん化度88%)でコートしたものを  
用いた。溶液を上記トリアセチルセルロースフィルム上に流延した後、20℃  
のオーブン内で3分間放置し、アセトンを蒸発させてガラス板上に厚さ3 $\mu$ mの  
シート層を形成させた。このシートを透過型光学顕微鏡により観察したところ、  
シートは規則正しい液滴相構造を有し、液滴の平均重心間距離は4.3 $\mu$ mで、  
その標準偏差は平均値の24%であり、液滴直径の平均値は3.4 $\mu$ mであった。  
また、液滴部分のシートに占める割合は、50%であった。更に、シートの全  
光線透過率は91%であった。

## 【0068】

## (比較例1)

セルローストリアセテート(ダイセル化学工業(株)製、LT-105)70  
重量部を塩化メチレン/メタノール混合溶媒(9/1;重量比)90重量部に溶  
解した。溶液にPMMA系微粒子(積水化学工業(株)製、MBX-2)30重  
量部を混合し、流延、キャストし、100 $\mu$ mのシートを得た。得られたシート  
透過型光学顕微鏡により観察したところ、シートはランダムな液滴相構造を有し  
ていた。液滴直径の平均値は3.0 $\mu$ mであった。又、シートの全光線透過率は  
92%であった。

## 【0069】

## (評価結果)

## (1) 光散乱シートに対して垂直方向より光が入射する時の散乱特性測定:

実施例1、2及び比較例1で得られた光散乱シートに対して、垂直方向より光が  
入射する時の光拡散強度と散乱角度の関係を、レーザー光散乱自動測定装置(日  
本科学エンジニアリング(株)製)を用いて測定した(図3)。測定結果を図5に  
示す。図5から明らかなように、ランダムに液滴相構造が分布する比較例1のシ  
ートではガウス分布型の散乱光強度を示すのに対して、実施例のシートは、特定  
角度(実施例1では7°、実施例2では6°)に散乱光が指向している。

## (2) 表示明るさ:

実施例1、2及び比較例1で得られた光散乱シートを組み込んだ反射型LCDモ  
デル装置を作成(図1)し、フロント面の斜め上の方向からスポットライト白色

光を照射し、垂直方向に反射する光の強度を測定した（図4）。入射角度（散乱角度 $\theta 2$ ）に対応する垂直方向の反射光の強度を以下の基準に従って評価した。結果を表1に示す。

【0070】

◎：非常に明るい

○：明るい

△：普通～暗い

【0071】

【表1】

散乱角度 ( $\theta 2$ )	実施例1	実施例2	比較例1
5°	◎	◎	△
10°	◎	◎	△
15°	○	△	△
20°	○	△	△
25°	△	△	△

【0072】

表1から明らかなように、実施例1～2の透過型光散乱シートは特定の散乱角度に対する反射光の強度が強く、高い指向性を有していることがわかる。

【0073】

#### 【発明の効果】

本発明によると、スピノーダル分解により、低コストで等方性の液滴相構造を有する透過型光散乱シートを製造できる。この透過型光散乱シートを用いると、入射光に拡散性のみならず高い指向性を付与できる。そのため、本発明の透過型光散乱シートを用いると、カラー表示装置であっても液晶表示装置の表示画面を高度に明るくできるため、反射型LCD、特に携帯型情報機器のカラー型液晶表示装置に好適に利用できる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】

図1は、反射型LCDの断面の概略図である。

【図2】



図 2 は、透過型光散乱シートの指向性の評価方法の概略図である。

【図 3】

図 3 は、光散乱シートに対して垂直方向より光が入射する時の光拡散強度特性の測定方法の概略図である。

【図 4】

図 4 は、透過型光散乱シートを利用したときの反射型 LCD 表示明るさの評価方法の概略図である。

【図 5】

図 5 は、透過型光散乱シートに対して垂直方向より光が入射する時の光拡散強度と散乱角度との関係を散乱角度  $2^{\circ} \sim 20^{\circ}$  の範囲で示したグラフである。

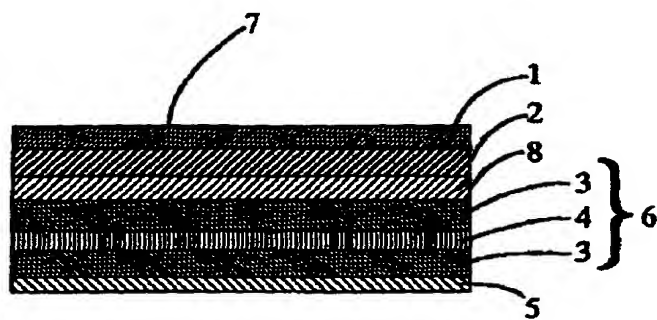
【符号の説明】

1. 偏光手段
2. 透過型光散乱シート
3. ガラス版
4. 液晶
5. 反射手段
6. 液晶セル
7. フロント面
8. カラーフィルター
9. 接着層
10. レーザー装置
11. スポットライト白色光
12. レーザー光
13. 検出器
14. 検出器の回転方向
15. 直進光
16. 散乱角度
17. 散乱角度 16 に対する散乱光

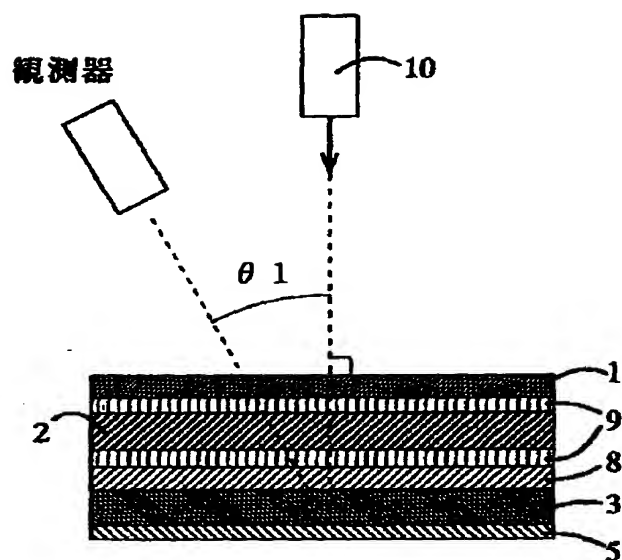
特 2 0 0 0 - 0 8 2 4 2

【書類名】 図面

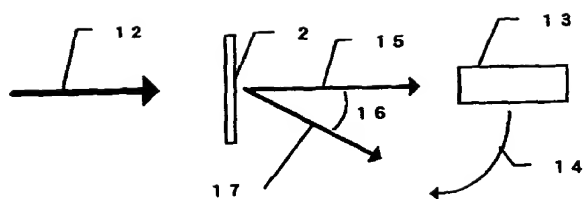
【図 1】



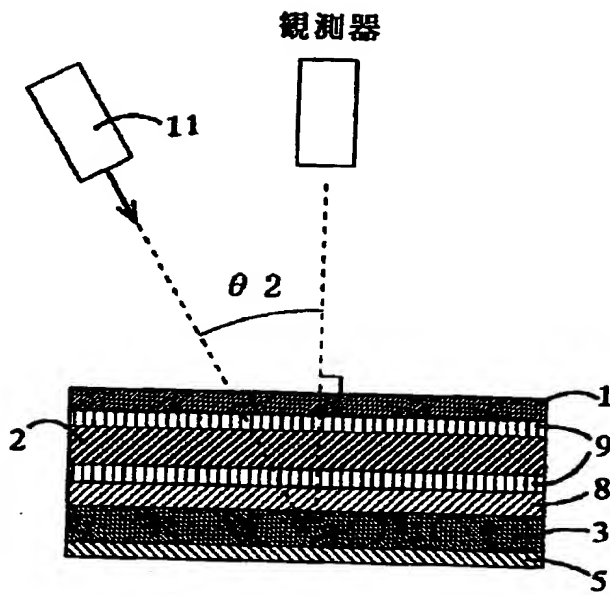
【図 2】



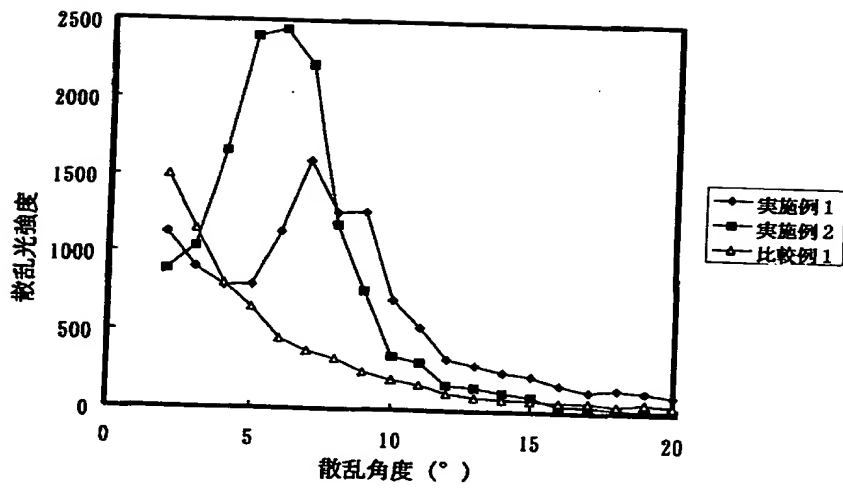
【図 3】



【图 4】



【图 5】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 入射光に拡散性と指向性を付与できる光散乱シート（又はフィルム）を提供すること、入射光に拡散性と指向性を付与できる光散乱シートを用いた反射型液晶表示装置を提供すること、入射光に拡散性と指向性を付与できる光散乱シートを簡便に製造できる方法を提供することを課題とする。

【解決手段】 互いに屈折率の異なる複数のポリマーで構成され、かつ液滴相構造を少なくとも有する透過型光散乱シート。また、その透過型光散乱シートを用いた反射型液晶表示装置。また、互いに屈折率の異なる複数のポリマーを均一に溶解した溶液から溶媒を蒸発させてシートを製造する際に、スピノーダル分解により液滴相構造を形成させる光散乱シートの製造方法。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000002901]

1. 変更年月日	1990年 8月28日
[変更理由]	新規登録
住 所	大阪府堺市鉄砲町1番地
氏 名	ダイセル化学工業株式会社